

УДК: 537.611.2

Г.С.Євдокімова¹, В.В.Маслюк², Ю.Ю.Білак¹

¹ Закарпатський державний університет, 88015, Ужгород, вул. Занковецької, 89а,

² Інститут електронної фізики НАН України, 88017, Ужгород, вул. Університетська 21,
e-mail : maslyuk@iep.org.ua

МАГНІТНА СТРУКТУРА КЛАСТЕРА Cr₃

Представлено результати дослідження магнітної структури кластера Cr₃ у рамках теорії функціоналу густини. Показано, що неколінеарна магнітна конфігурація відповідає основному стану кластера при відхиленні одного магнітного моменту від іншого на кут 120°. Опис системи за допомогою моделі класичних спінів дозволив стверджувати, що для дослідження магнітних збуджень необхідно враховувати орієнтаційні стани, що знаходяться поблизу основного стану кластера.

Ключові слова: магнітні кластери, неколінеарний магнетизм, розрахунки з перших принципів.

Вступ

Однією з основних проблем сучасної прикладної та фундаментальної фізики є описання та передбачення електронних та магнітних властивостей наносистем, таких як кластери, молекули, тощо. Адже такі системи розглядаються як потенційні кандидати для майбутнього використання при записі інформації та у квантових комп'ютерах. Незважаючи на потужний розвиток експериментальної фізики (технологій скануючого тунельного мікроскопа [1] для дослідження молекул на поверхні та молекулярно-пучкової епітаксії для упорядкування наносистем на поверхні [2]), теоретичні дослідження магнітних кластерів та молекул є надзвичайно складними і потребують потужних розрахункових ресурсів та постійного розвитку існуючих методів. При моделюванні магнітних наносистем зазвичай необхідно виходити за рамки спин-поляризованого підходу та враховувати, що в основному стані молекули або кластери можуть мати довільне магнітне впорядкування, а відповідно і інші електронні та магнітні властивості.

У даній роботі ми теоретично досліджуємо магнітні властивості кластера Cr₃ за допомогою методу стримування напрямку магнітних моментів на вузлах (СМВ) [3], адаптованого до методу лінійної комбінації атомних орбіталей

(ЛКАО). Даний метод дає можливість фіксувати напрямки магнітних моментів у довільному положенні, що дозволяє отримати параметри взаємодії спінів між собою, а отже і проводити подальші дослідження спінової динаміки та спінових переходів, тощо. Попередні теоретичні дослідження прийшли до різних результатів щодо реалізації магнітної конфігурації в основному стані. А саме, феромагнітні [4] та неколінеарні [5, 6], де один магнітний момент відхилений від інших на кут 120°. Тим не менше, в жодній з попередніх робіт не було отримано параметрів обмінної взаємодії, які дозволяють кількісно описати взаємодію спінів.

Теоретичні методи

Для визначення електронних та магнітних властивостей кластера Cr₃ ми використовували наближення локальної густини [7] у рамках теорії функціоналу густини. Для розрахунків використовувався пакет SIESTA [8], який був нами модифікований [3] для дослідження магнітних систем з довільним магнітним впорядкуванням. Для опису електронної підсистеми були отримані псевдопотенціали [9], що включали 3*p* напіввалентні орбіталі з радіусами обнулення для *s/p/d/f* орбіталей 1.79/1.79/2.39/2.25 атомних одиниць відповідно. Ми отримали, що

базис з двома базисними функціями для s, p орбіталей та трьома базисними функціями для d орбіталей найкраще підходить для описання фізичних властивостей.

Відомо, що системи з неколінеарним магнітним впорядкуванням не мають спільної магнітної осі квантування. Це означає, що хвильова функція електрона для кожного стану η є спінором

$$\Psi_{\eta}(\vec{r}) = \sum_{\mu} \begin{pmatrix} c_{\eta\mu}^{+} \\ c_{\eta\mu}^{-} \end{pmatrix} \phi_{\mu}(\vec{r}). \quad (1)$$

Таким чином, електронна густина $\rho(\vec{r})$ у кожній точці простору є матрицею 2×2 у спіновому просторі. Використовуючи згідно [10] полярні кути Θ, φ ми можемо для неї записати, що

$$\rho(\vec{r}) = \begin{pmatrix} n + m_z & m_x - im_y \\ m_x + im_y & n - m_z \end{pmatrix}(\vec{r}), \quad (2)$$

де n – заряд; m_x, m_y та m_z – декартові компоненти магнітного моменту, що визначаються через кути $\Theta(\vec{r}), \varphi(\vec{r})$.

Однією з проблем дослідження магнітних систем є складність фіксування напрямку магнітного моменту на атомах у рамках методу ЛКАО. Тому нами був запропонований метод СМВ, що успішно вирішує дану проблему. Особливістю методу СМВ є припущення, що всі орбіталі μ одного і того ж атома k мають спільний напрямок магнітного моменту, що в термінах матриці густини $\hat{P}_{\mu\nu}$ можна записати як

$$\hat{P}_{\mu\nu}^d = \begin{pmatrix} P_{\mu\nu}^{+} & 0 \\ 0 & P_{\mu\nu}^{-} \end{pmatrix} = U(\Theta_k, \varphi_k) \hat{P}_{\mu\nu} U^{\dagger}(\Theta_k, \varphi_k), \quad (3)$$

де $\mu, \nu \in k$.

Таке перетворення дозволяє розділити окремо спін-вверх $P_{\mu\nu}^{+}$ і спін-вниз $P_{\mu\nu}^{-}$ компоненти матриці густини в локальних системах координат та кути намагніченості на кожному атомі $(\Theta_k, \varphi_k, \text{де } k=1 \dots N)$. Задаючи різні значення кутів Θ_k, φ_k та фіксуючи їх, ми можемо досліджувати збуджені магнітні стани.

Для описання системи за допомогою модельних Гамільтоніанів ми використо-

ували наближення класичних спінів у представленні Гайзенберга

$$H = J_0 + \frac{1}{2} \sum J_{ij} (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j), \quad (4)$$

де J_{ij} – параметр обмінної взаємодії між двома спінами i, j , що характеризуються магнітними моментами $\vec{S}_i = S\vec{e}_i$ та $\vec{S}_j = S\vec{e}_j$ відповідно. У даній роботі ми вважали, що величини магнітних моментів (S) однакові на всіх атомах для всіх орієнтаційних положень системи, тому для описання спіну ми використовували тільки його напрямок \vec{e}_i .

Результати та обговорення

Першим етапом наших досліджень було вивчення релаксації структури кластера Cr_3 . На рис. 1 показана залежність енергії зв'язку кластера від віддалі між атомами Cr для трьох різних магнітних конфігурацій кластера хрому, а саме неколінеарної магнітної структури (НК), антиферомагнітної (АФ), де один магнітний момент протилежно напрямлений до двох інших та феромагнітної (ФМ) – всі магнітні моменти співнаправлені.

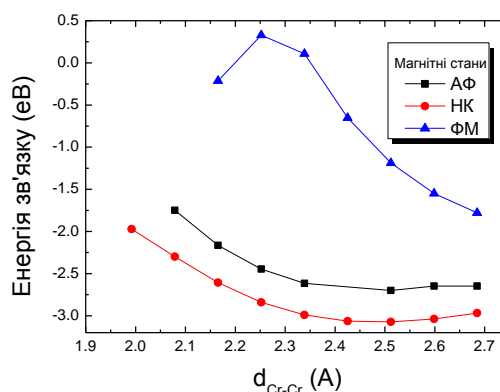


Рис. 1. Залежність енергії зв'язку кластера Cr_3 від віддалі між атомами Cr . Криві відповідають трьом різним магнітним конфігураціям: АФ – антиферомагнітної, НК – неколінеарної та ФМ – феромагнітної.

Як видно з рисунка, основному стану відповідає неколінеарне магнітне впорядкування при $d_{\text{Cr-Cr}} = 2.49 \text{ \AA}$, причому для всіх точок даної кривої магнітні моменти атомів хрому відхилені один від одного на 120° . Таким чином, наші результати добре

співпадають з даними робіт [5, 6], де така ж сама магнітна структура була отримана.

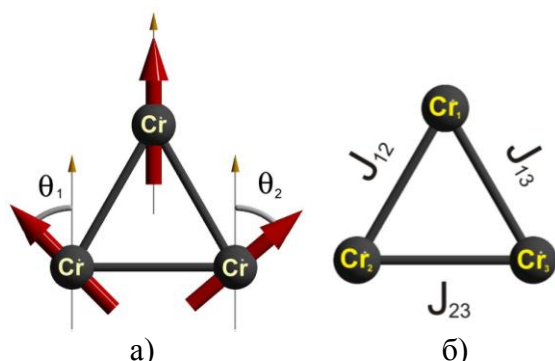


Рис. 2. Схематичне представлення неколінеарної магнітної конфігурації у кластері Cr_3 в залежності від кутів Θ_1 та Θ_2 (а) та схематичне представлення параметрів обмінної взаємодії між спінами відповідних атомів Cr (б).

При подальшому дослідженні магнітних властивостей кластера Cr_3 ми варіювали кути Θ_1 та Θ_2 (показані на рис. 2(а)) від 0° до 180° . При цьому напрямок одного магнітного моменту та геометрія кластера були фіксованими. На рис. 3 показано залежність енергії зв'язку атомів Cr від значень Θ_1 та Θ_2 . Як видно з рисунка система має тільки один мінімум, що відповідає значенням кутів $\Theta_1 = \Theta_2 = 120^\circ$.

Дані потенціального рельєфу з рис. 3 були використані для отримання параметрів обмінної взаємодії модельного Гамільтоніана, записаного у (4). Тут ми враховували два можливі рішення. Перше допускало нееквівалентність всіх спінів ($J_{12} \neq J_{13} \neq J_{23}$), друге – враховувало, що всі атоми в основному стані еквівалентні, тому $J_{12} = J_{13} = J_{23}$. Індеси атомів та відповідні параметри взаємодії J_{ij} показані на рис. 2(б). Підгонка моделі (4) до потенціального рельєфу проводилася за допомогою програми FUMIL [11]. Величини обмінних параметрів для двох рішень показано в табл., 1.

Таблиця 1

Параметри обмінної взаємодії для кластера Cr_3

Рішення	J_{12} (eV)	J_{13} (eV)	J_{23} (eV)
Перше	0.57	0.57	0.61
Друге	0.58	0.58	0.58

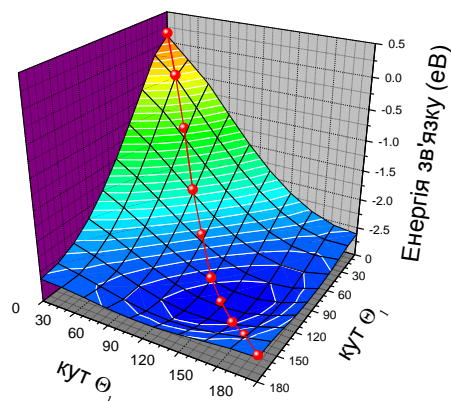


Рис. 3. Залежність енергії зв'язку між атомами хрому від відхилень магнітних моментів на двох атомах, заданих кутами Θ_1 та Θ_2 .

Як видно з таблиці 1, параметри J_{ij} для першого рішення, показують, що другий та третій атоми хрому (див. рис. 2(б)) еквівалентні. Тим не менше параметри знаходяться близько за величиною для двох можливих описань системи, що дозволяє використовувати також і друге рішення для передбачення інших локальних магнітних станів при варіації кутів Θ_1 та Θ_2 в інтервалі від 0° до 360° . Аналізуючи відхилення модельного потенціального рельєфу від розрахованого, спостерігається відхилення у кривизні поверхні в околі мінімуму, що впливатиме на визначення коливних мод спінових збуджень. Тому використовуючи тільки значення орієнтаційної енергії в околі мінімуму ми отримали $J_{12} = J_{13} = J_{23} = 0.53$ eV при максимальному відхиленні розрахованого та модельного потенціального рельєфів 0.01 eV.

Висновки

У роботі показано, що неколінеарна магнітна структура відповідає основному стану кластера Cr_3 , де відхилення одного магнітного моменту від інших становить 120° . На основі розрахованого потенціального рельєфу були отримані параметри обмінної взаємодії у моделі класичних спінів. Показано, що для кращого описання основного стану потрібно використовувати дані енергії, що знаходяться біля мінімуму.

Роботу виконано при фінансовій підтримці НАН України у рамках

“Програми інформатизації НАН України”.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. W. Chen, T. Jamneala, V. Madhavan, M.F. Crommie, Phys. Rev. B 60 p.R8529 (1999).
2. T. Jamneala, V. Madhavan, M.F. Crommie, Phys. Rev. Lett. 87 p.256804 (2001).
3. V.V. Maslyuk, Simulation of the electronic transport through organo-metallic molecules (Doktorarbeit, 2009).
4. D. Hobbs, G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B, 62 p.11556 (2000).
5. J.E. Peralta, G.E. Scuseria, M.J. Frisch Phys. Rev. B, 75, p.125119 (2007).
6. D. Naveh, L. Kronik, Solid State Communications 149, p.177 (2009).
7. D.M. Ceperley and B.J. Alder. Phys. Rev. Lett., 45, p.566, (1980).
8. D. Sánchez-Portal, P. Ordejón, E. Artacho and J. M. Soler, Int. J. Quantum Chem., 65, p.453 (1997).
9. N. Troullier and J. L. Martins, Phys. Rev. B, 43, p.1993 (1991).
10. J. Kübler, K.H. Höck, and J. Sticht, J. Appl. Phys. 63, p.3482 (1988).
11. I.N. Silin, FORTRAN program library (Dubna, JINR, D-520, 1970).

Стаття надійшла до Редакції 30.05.2011

G.S. Yevdokimova¹, V.V. Maslyuk², Yu.Yu. Bilak¹

¹ Transcarpatian State University, 88015, Uzhhorod, Zankovetskoi St., 89a,

² Institute of Electron Physics of NAS of Ukraine, 88000, Uzhhorod, Universytetska Str., 21

MAGNETIC STRUCTURE OF THE Cr₃ CLUSTER

The results of the investigation of the magnetic structure of the Cr₃ cluster are shown. The calculations were performed for free standing cluster using the linear combination of atomic orbitals formalism based on density functional theory. We show that the cluster has non-collinear magnetic structure in the ground state, where the canting angle between nearest magnetic moments is 120°. Also we find the parameters for the model Hamiltonian which describe different magnetic states of the cluster.

Keywords: magnetic clusters, non-collinear magnetism, ab-initio calculations.

Г.С.Евдокімова¹, В.В.Маслюк², Ю.Ю.Білак¹

¹ Закарпатський державний університет, 88015, Ужгород, ул. Заньковецької, 89а,

² Інститут електронної фізики НАН України, 88017, Ужгород, ул. Университетська, 21

МАГНИТНАЯ СТРУКТУРА КЛАСТЕРА Cr₃

Представлены результаты исследования магнитной структуры кластера Cr₃ в рамках теории функционала плотности. Показано, что неколлинеарная магнитная конфигурация соответствует основному состоянию кластера при отклонении одного магнитного момента от другого на угол 120°. Описание системы с помощью модели классических спинов позволило утверждать, что для исследования магнитных возбуждений необходимо учитывать ориентационные состояния, находящиеся вблизи основного состояния кластера.

Ключевые слова: магнитные кластеры, неколлинеарный магнетизм, расчеты с первых принципов.